

19



Octrooiraad  
Nederland

11 9500080

12 A TERINZAGELEGGING

21 Aanvraag om octrooi: 9500080

22 Ingediend: 17.01.95

51 Int.Cl.<sup>6</sup>  
B01J8/04, C07C31/04

30 Voorrang:  
20.01.94 CH 0000169/94

43 Ter inzage gelegd:  
01.09.95 I.E. 95/16

71 Aanvrager(s):  
Methanol Casale S.A. te Lugano-Besso,  
Zwitserland (CH).

72 Uitvinder(s):  
Umberto Zardi te Breganzona(CH)  
Giorgio Pagani te Milaan(IT)

74 Gemachtigde:  
Ir. A.C.Th. Timmermans c.s. te 5600 CG  
Eindhoven.

54 Werkwijze voor in-situ modernisering van een reactor voor het uitvoeren van heterogene exotherme synthesesreacties, in het bijzonder van het zogenaamde ruittype

57 Werkwijze voor de in-situ modernisering van een reactor voor het uitvoeren van heterogene exotherme synthesesreacties, in het bijzonder van het zogenaamde ruittype, omvattende een uitwendige omhulling, die een verdeling binnen de omhulling vereist van een veelheid van op elkaar gestapelde katalysatorbedden, welke op vooraf bepaalde afstanden gedragen worden door middel van ondersteuningselementen die rusten op, of bevestigd zijn aan, bijv. door lassen, een veelheid van ringvormige schouders die reeds aanwezig waren in de reactor.

NL A 9500080

De aan dit blad gehechte stukken zijn een afdruk van de oorspronkelijk ingediende beschrijving met conclusie(s) en eventuele tekening(en).

Titel: Werkwijze voor in-situ modernisering van een reactor voor het uitvoeren van heterogene exotherme synthesesereacties, in het bijzonder van het zogenaamde ruittype.

5 De onderhavige uitvinding heeft betrekking op een werkwijze voor in-situ modernisering van een reactor voor het uitvoeren van heterogene exotherme synthesesereacties, in het bijzonder van het zogenaamde ruittype, omvattende een uitwendige omhulling, met ten minste een katalysatorbed binnen de genoemde omhulling en ten  
10 minste een verdeler voor koelgas welke gedragen wordt in het katalysatorbed door een ringvormige schouder die uit de omhulling steekt.

Meer in het bijzonder heeft de onderhavige uitvinding betrekking op een werkwijze voor modernisering van het type die  
15 de stap omvat waarbij binnen de genoemde omhulling voorzien wordt in een veelheid aan op elkaar gestapelde katalysatorbedden in onderling op afstand geordend verband.

In de onderstaande beschrijving en in de navolgende conclusies moet de term "in-situ modernisering" worden opgevat als de  
20 modificatie ter plaatse, van een reeds bestaande reactor, teneinde zijn werking te verbeteren en bijv. een verwerkingscapaciteit en/of een omzettingsopbrengst te verkrijgen die vergelijkbaar is met die van een nieuw gebouwde reactor.

In de terminologie van dit gebied wordt dit type modernisering  
25 ook wel aangeduid als "retrofitting" of "revamping".

Zoals bekend is het op het gebied van de heterogene exotherme synthesesereacties in het algemeen, en meer in het bijzonder van de methanol produktie, noodzakelijk om te voldoen aan een tweeledige behoefte, d.w.z. enerzijds het verhogen van de  
30 verwerkingscapaciteit van reeds bestaande synthesesereactoren en anderzijds een verbetering van de omzettingsopbrengst en een vermindering van het energieverbruik van de reactor.

Met het doel aan de bovenbeschreven voorwaarden te voldoen, wordt de zogenaamde techniek van de modernisering van reeds  
35 bestaande reactoren, gericht op het vermijden van kostbare vervanging van de laatste en tegelijkertijd bewerkstelligen van een maximale omzetting die bestaanbaar is met de beschikbare katalysatorvolumen, in toenemende mate aanvaard.

9500080

Voor de modernisering van de heterogene exotherme synthesesereactor van het zogenaamde "ruit" of "ICI" type, d.w.z. omvattende een enkelvoudig katalysatorbed waarin een veelvoud aan ruitvormige verdelers voor de koelgassen wordt ingebracht, vereist een eerste werkwijze binnen de techniek voorgestelde werkwijze de vervanging van het genoemde enkelvoudige bed door een veelvoud van op elkaar gestapelde katalysatorbedden in onderling op afstand geordend verband zoals beschreven wordt in bijv. de Europese octrooiaanvraag EP-A-0 359 952 van dezelfde aanvrager.

In overeenstemming met de genoemde werkwijze wordt de onderzijde van elk katalysatorbed direct geplaatst op de ringvormige ondersteuningsschouders van de eerder genoemde ruitvormige verdelers, terwijl nieuwe verdelers voor koude reactie gassen worden ingebracht tussen de verschillende katalysatorbedden om de noodzakelijke tussenkoeling te bewerkstelligen.

Alhoewel een toename van de verwerkingscapaciteit en een afname van het energieverbruik van de reeds bestaande reactor wordt bereikt, staat de noodzaak om de reactorstructuur zo veel mogelijk onveranderd te behouden, en met name de uitwendige mantel, geen optimale verdeling van de katalysator volumens toe in de synthesesereactor.

Juist vanwege deze noodzaak, kan de positionering van de nieuwe katalysatorbedden en daarmee de verdeling van de katalysatorvolumens in de reactor, niet geheel volgens wens uitgevoerd worden.

Als resultaat kan de gemoderniseerde reactor in overeenstemming met de bevindingen van de bekende techniek een omzettingsoptimum bereiken die lager is dan die bereikt zou kunnen worden bij een optimaal gebruik van het volume dat theoretisch binnen de reactor beschikbaar is.

Het technische probleem dat aan de basis ligt van de onderhavige uitvinding is om deze reden het voorzien in een werkwijze voor het moderniseren van een heterogene exotherme synthesesereactor, in het bijzonder maar niet uitsluitend van het zogenaamde ruittype, welke een optimale verdeling van de katalysator volumens mogelijk maakt in de synthesesereactor, en

9500080

daarmee de omzettingsofbrengst en/of de verwerkingscapaciteit te verhogen ten opzichte van die welke bereikbaar zijn met de werkwijze voor modernisering in overeenstemming met de bovengenoemde bekende technieken.

- 5 Dit probleem wordt opgelost met een werkwijze van het type dat hierboven uiteengezet is, welke hierdoor gekenmerkt wordt dat voorzien wordt in ten minste een van de katalysatorbedden in de mantel op een vooraf bepaalde afstand van de resterende bedden wordt aangebracht met behulp van ten minste een  
 10 ondersteuningselement dat rust op, of bevestigd is aan, ten minste een ringvormige schouder.

Het voordeel van de werkwijze van de onderhavige uitvinding is dat het mogelijk is om de katalysatorbedden te rangschikken in overeenstemming met de optimale katalysator verdeling voor de  
 15 specifieke reactor die beschouwd wordt, teneinde het best mogelijk gebruik van het beschikbare volume te verkrijgen.

In overeenstemming met de onderhavige uitvinding kunnen de ondersteuningselementen van de bedden slechts rusten op de hierboven genoemde ringvormige schouders of kunnen deze hier  
 20 permanent op bevestigd worden, bijv. door lassen.

In overeenstemming met de werkwijze van de onderhavige uitvinding kan een optimale verdeling van het katalysatorvolume in de reactor verkregen worden door gebruik te maken van die ringvormige schouder -tussen de reeds aanwezigen- welke bewezen  
 25 heeft in de meest geschikte positie te verkeren voor de afmetingen van het bed dat ondersteund moet worden.

Bij wijze van voorbeeld kunnen, afhankelijk van de relatieve plaatsing tussen de onderzijde van het bed en de ringvormige ondersteuningsschouder, de eerder genoemde  
 30 ondersteuningselementen op twee manieren voldoen aan hun ondersteuningstaak, nagenoeg werkend als stut, d.w.z. samengedrukt onder het bed indien zij uitsteken onder de bodem hiervan, en grotendeels werkend als trekstangen, d.w.z. onder spanning gebracht door het gewicht van het bed indien zij zich  
 35 boven de bodem hiervan bevinden.

In dit tweede geval wordt het bed "opgehangen" aan de ringvormige schouder waarop de bijbehorende ondersteuningselementen rusten of bevestigd zijn.

9500080

Het voordeel van het ondersteunen van de katalysatorbedden in de meest passende positie maakt het in het bijzonder mogelijk, afwijkend van de bekende techniek, om een aanvullende hoeveelheid katalysator in de kopruimte van de reactor te brengen, boven een  
5 punt dicht bij de voedingsopening voor de reagerende gassen.

Het is duidelijk dat de lengte van elk ondersteuningselement door iedere technisch deskundige kan klaarblijkelijk bepaald worden, in afhankelijkheid van de structurele karakteristieken van de reactor die gemoderniseerd moet worden (zoals bijv. de  
10 hoogte en plaats van de ondersteunende ringvormige schouders), en de eigenschappen van de katalysator die gebruikt wordt voor het uitvoeren van de heterogene synthesesereactie en van de omzettingsofbrengst of verwerkingscapaciteit die vereist wordt.

In overeenstemming met de onderhavige uitvinding kunnen de  
15 waarden van de laatste met voordeel verhoogd worden dankzij een optimaal gebruik van de beschikbare ruimte binnen de synthesesereactor.

Volgens de onderhavige uitvinding bezitten de ondersteuningselementen van de katalysator bedden een vorm die  
20 het beste aansluit op de plaatsingsvoorwaarden in de reactor, ofwel als stutten ofwel als trekstaven, die rusten op de reeds aanwezige ringvormige schouders. Daarom kunnen de genoemde ondersteuningselementen bijvoorbeeld in hoofdzaak een ringvormige vorm bezitten, teneinde te voldoen aan de  
25 cilindrische symmetrie van de synthesesereactor.

In de uitvoeringsvorm van voorkeur van de onderhavige werkwijze voor modernisering wordt elk katalysatorbed gedragen in de reactor door middel van een respectievelijk ondersteuningselement in de reactor welke een veelheid van  
30 nagenoeg cilindervormige staven omvat, geplaatst op een vooraf ingestelde afstand en gesteund op de hierboven genoemde ringvormige schouders.

Indien de bedden aan de ringvormige schouders gehangen worden dan zijn deze staven voorzien van geschikte haakvormige  
35 uiteinden die aansluiten op de onderzijde van het bed en op de gekozen schouder dragen ter ondersteuning van het bed.

In overeenstemming met de onderhavige uitvinding kunnen de verschillende katalysatorbedden van de reactor door de diverse

9500080

reactiemengsels gepasseerd worden via een axiale of radiale stroming ofwel via een axiale-radiale stroming.

In de uitvoeringsvorm van voorkeur worden de katalysatorbedden axiaal gepasseerd door de gasvormige mengsels met uitzondering van de laatste, welke via een axiale-radiale stroom gepasseerd wordt met een voordelige vermindering van het energieverbruik als gevolg van de verminderde drukval over het bed.

De karakteristieken en voordelen van de onderhavige uitvinding worden uiteengezet in de beschrijving van een uitvoeringsvorm hiervan, welke hieronder gegeven is in de vorm van een niet beperkend voorbeeld met verwijzing naar de bijgevoegde tekeningen.

Bij de tekeningen:

Figuur 1 toont een dwarsdoorsnede in de lengterichting van een conventionele reactor van het zogenaamde ruittype voor het uitvoeren van heterogene exotherme synthesesereacties;

Figuur 2 toont een dwarsdoorsnede in de lengterichting van een reactor die verkregen is na modernisering van de ruitreactor uit figuur 1 met de werkwijze van modernisering die onderwerp is van de onderhavige uitvinding;

Figuur 3 toont een vooraanzicht op vergrote schaal en in gedeeltelijke dwarsdoorsnede van, enkele details van de reactor van figuur 2; en

Figuur 4 toont een bovenaanzicht op vergrote schaal en een gedeeltelijke dwarsdoorsnede van aanvullende details van de reactor van figuur 2.

Onder verwijzing naar figuur 1 geeft referentienummer 1 een reactor aan van het zogenaamde ruittype voor het uitvoeren van heterogene exotherme synthesesereacties bij middendruk (60-100 bar) voor bijvoorbeeld methanol produktie.

De reactor 1 omvat een buisvormige omhulling of mantel 2 die op de tegenover elkaar gelegen zijden voorzien is van in- en uitlaatopeningen 3,4 voor respectievelijk het invoeren van de reactievoedingsgassen en het afvoeren van de reactieprodukten, waarin een enkelvoudig katalysatorbed gedragen wordt.

Het bed 5 is conventioneel verdeeld in vier gedeelten 5a-5d met behulp van de drie verdelers 6a-6c voor koude blusgassen die zich op evenwijdige wijze uitstrekken binnen het bed op vooraf

9500080



behulp van een veelheid van ringvormige schouders 26, 27 en 28 en de ondersteuningselementen 22-24.

Op deze manier wordt een veelheid aan nagenoeg cilindrische kamers 16, 17 en 18 begrensd in mantel 2, die ontworpen zijn om een mogelijkheid tot grondige menging te verkrijgen van de gassen die uit elk van de bedden 12 - 14 opstijgt en de koelings- of smoorgassen die afkomstig zijn van de buitenzijde van reactor 1.

In overeenstemming met de uitvoeringsvorm van voorkeur omvatten de gasdoorlaatbare bodems 29, 30 en 31, waarop de katalysatorbedden 12 -14 rusten, respectievelijke diafragma's 33, 34 en 35 die zich uitstrekken vanaf pijp 25 naast en onder de ondersteuningsstructuren 40, 41 en 42.

Op deze manier worden de reactiemengsels die opstijgen uit elk van genoemde bedden met behulp van de diafragma's 33 -35 naar de binnenzijde van mantel 2 gevoerd, alwaar zij in nauw contact komen met de koelings- of smoorgassen.

Met voordeel worden de laatste de reactor 1 ingevoerd via toroïdale verdelers 19, 20 en 21 die verbonden zijn met de reeds bestaande openingen 9a - 11a, 9b - 11b.

In overeenstemming met de uitvoeringsvorm van voorkeur van de uitvinding omvat elk van de ondersteuningselementen 22 - 24 een veelheid aan nagenoeg cilindrische staven 36, die onderling op regelmatige afstanden verbonden zijn door middel van een ondersteunings- en versterkingsring 44 (fig. 3).

De bijzondere vorm van de staven 36, die met voorkeur van staal gemaakt geworden, is niet kritisch. Bij voorkeur hebben de staven echter een vierkante of cirkelvormige dwarsdoorsnede.

In de werkwijze van moderniseren volgens de onderhavige uitvinding, wordt het onderste katalysatorbed 15, dat een groter volume bezit bij voorkeur voorzien van middelen, die op zich bekend zijn, voor het hierin verkrijgen van een radiale of axiale-radiale stroming.

De genoemde middelen kunnen bijv. een ringvormige katalysatorhoudende mand 32 omvatten die voorzien is van tegenover elkaar gelegen gasdoorlaatbare wanden 32a, 32b voor respectievelijk de gasinlaat en -uitlaat.

Middelen van dit type voor het bewerkstelligen van een axiale-radiale gasstroming in de katalysatorbedden worden bijv.

3500080



beschreven in het Amerikaanse octrooi 4 755 362 waarvan de beschrijving als hier ingevoegd beschouwd moet worden te zijn door verwijzing.

Door middel van de aldus gemoderniseerde reactor 1 kan een  
5 heterogene exotherme synthesesereactie, zoals bijv. de methanolsynthese, uitgevoerd worden door de gassen de katalysatorbedden 12 - 15 te laten passeren op een wijze die op zich bekend is.

In dit opzicht moet er op gewezen worden dat aan de  
10 benedenstroomse zijde van elk van de katalysatorbedden 12 - 14, die door een axiale stroming van de gasvormige reactiemengsels gepasseerd worden, de reactiemengsels verzameld worden en goed gemengd worden met de smoorgassen dankzij de aanwezigheid van de diafragma's 33 - 35 en de bijzondere opstelling van de toroïdale  
15 verdelers 19 - 21.

Met voordeel maakt de genoemde opstelling het mogelijk om een bijzonder effectieve menging te verkrijgen van de verschillende warme en koude gassen, en een optimale temperatuurbeheersing van de mengsels die naar het hieronder gelegen katalysatorbed gevoerd  
20 worden waar de synthesesereactie wordt voortgezet.

De uiteindelijke reactieprodukten die uit het laatste katalysatorbed 15 opstijgen, geleid door een centripetale axiale-radiale stroming, worden uiteindelijk aan reactor 1 onttrokken via opening 4.

25 De werkwijze van de onderhavige uitvinding maakt een optimale verdeling van de katalysator mogelijk in de verschillende bedden, die gedimensioneerd zijn in overeenstemming met de optimale ontwerpparameters, zelfs nadat de reactor in bedrijf genomen is.

Er is ook gevonden dat door de katalysatorbedden 12 - 14 op de  
30 juiste hoogte te brengen het mogelijk is om het totaalvolume katalysator die in de synthesesereactor gebracht wordt, te vergroten, waardoor de omzettingsofbrengst en/of de verwerkingscapaciteit, die haalbaar is met de gemoderniseerde reactor, verder toeneemt.

## CONCLUSIES

1. Werkwijze voor in-situ modernisering van een reactor voor het uitvoeren van heterogene exotherme synthesesereacties, in het bijzonder van het zogenaamde ruittype, omvattende een uitwendige omhulling (2), een katalysatorbed (5) in de genoemde omhulling (2) en ten minste een verdeler voor koelgas (6a, 6b, 6c) die in het genoemde katalysatorbed (5) gedragen wordt door een ringvormige schouder (8a, 8b, 8c) die uit de genoemde omhulling (2) steekt, waarbij de genoemde methode een stap omvat bestaande uit het voorzien van een veelheid boven elkaar gelegen katalysatorbedden (12, 13, 14, 15) in de genoemde omhulling (2) in een onderling op afstand geordend verband, hierdoor gekenmerkt dat ten minste een van de genoemde katalysatorbedden (12, 13, 14, 15) in de omhulling (2) wordt ondersteund op een vooraf bepaalde afstand van de resterende bedden door middel van ten minste een ondersteuningselement (22, 23, 24) welke rust op, of bevestigd is aan, ten minste een ringvormige schouder (8a, 8b, 8c).

2. Werkwijze volgens conclusie 1, hierdoor gekenmerkt dat genoemde, ten minste een ondersteuningselement (22, 23, 24), een veelheid van nagenoeg cilindrische staven omvat.

3. Werkwijze volgens conclusie 2, hierdoor gekenmerkt dat de genoemde staven (36) onderling op regelmatige afstanden verbonden zijn door middel van een ondersteunings- en verstevigingsring (44) en gedragen worden door ten minste een ringvormige schouder (8a, 8b, 8c).

4. Werkwijze volgens conclusie 2, hierdoor gekenmerkt dat de genoemde staven (36) voorzien zijn van tegen over elkaar gelegen nagenoeg haakvormige uiteinden.

5. Werkwijze volgens conclusie 1, hierdoor gekenmerkt dat het genoemde ondersteuningselement (22, 23, 24) nagenoeg buisvormig is.

6. Werkwijze volgens conclusie 1, hierdoor gekenmerkt dat elk van de genoemde katalysatorbedden (12, 13, 14, 15) in de mantel (2) gedragen wordt door een respectievelijk ondersteuningselement (22, 23, 24).

7. Reactor voor het uitvoeren van heterogene exotherme synthesesereacties, met een verbeterde verdeling van de

9500080

katalysatorvolumen, omvattende een uitwendige mantel (2), waarin een veelheid van boven elkaar gelegen katalysatorbedden (12, 13, 14) ondersteund worden in een onderling op afstand geordend verband en omvattende tenminste een verdeler voor koelingsgas (19, 20, 21) tussen de genoemde katalysatorbedden (12, 13, 14, 15), hierdoor gekenmerkt dat ten minste een van de genoemde katalysatorbedden (12, 13, 14, 15) wordt ondersteund op een vooraf bepaalde afstand van de resterende bedden door middel van ten minste een ondersteuningselement (22, 23, 24) welke rust op, of bevestigd is aan, ten minste een ringvormige schouder (8a, 8b, 8c) die in de omhulling (2) uitsteekt in de nabijheid van de genoemde verdeler voor koelingsgas (19, 20, 21).

8. Reactor volgens conclusie 7, hierdoor gekenmerkt dat ten minste een ondersteuningselement (22, 23, 24) is geïntegreerd met de genoemde ringvormige schouder (8a, 8b, 8c).

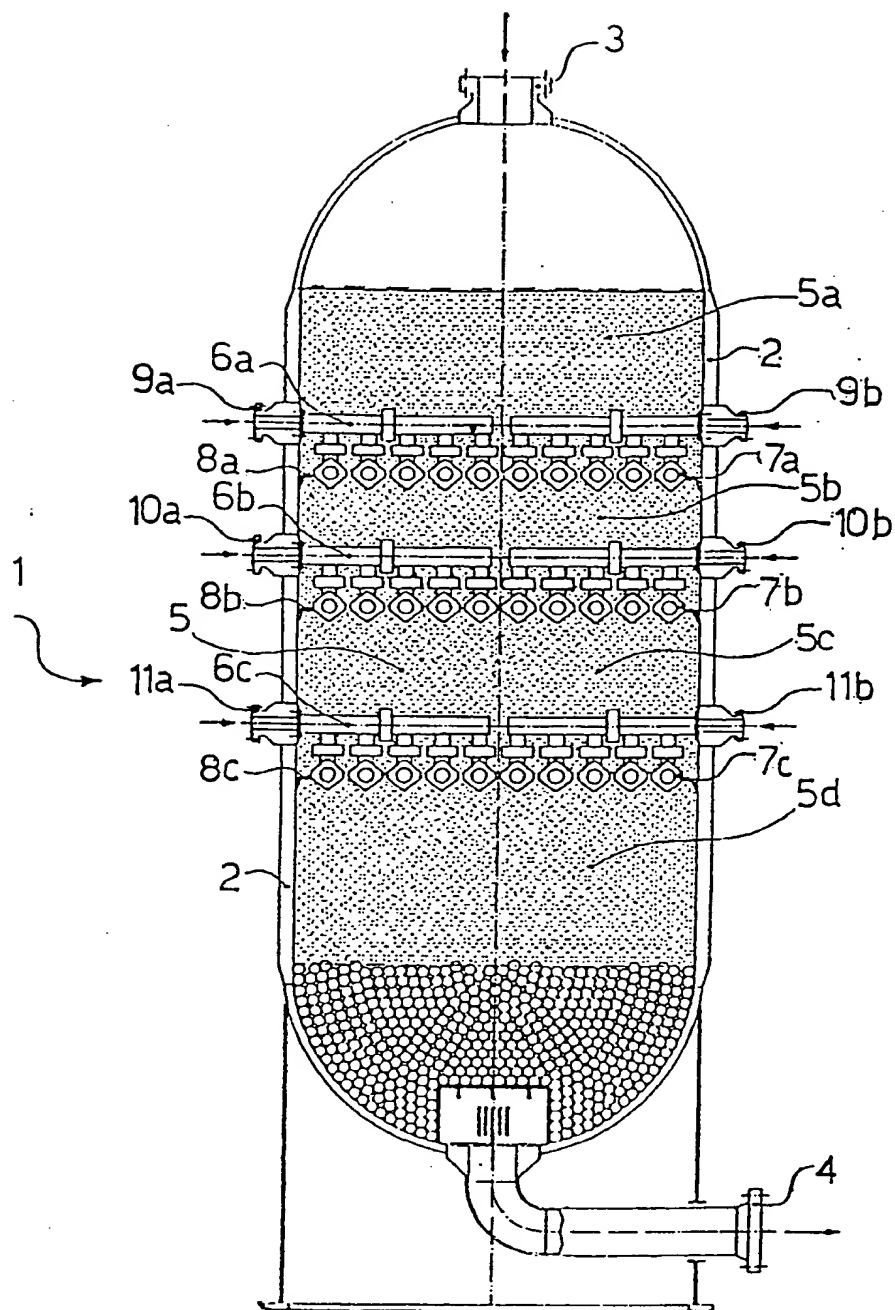
9. Reactor volgens conclusie 7, hierdoor gekenmerkt dat ten minste een ondersteuningselement (22, 23, 24) een veelheid aan nagenoeg cilindrische staven (36) omvat.

10. Reactor volgens conclusie 8, hierdoor gekenmerkt dat de genoemde staven (36) onderling op regelmatige afstanden verbonden zijn door middel van een ondersteunings- en verstevigingsring (44) en gedragen worden door ten minste een ringvormige schouder (8a, 8b, 8c).

11. Reactor volgens conclusie 9, hierdoor gekenmerkt dat de genoemde staven (36) voorzien zijn van tegenover elkaar gelegen nagenoeg haakvormige uiteinden.

12. Reactor volgens conclusie 7, hierdoor gekenmerkt dat ten minste een ondersteuningselement (22, 23, 24) nagenoeg buisvormig is.

13. Werkwijze volgens conclusie 7, hierdoor gekenmerkt dat elk van de genoemde katalysatorbedden (12, 13, 14, 15) in de omhulling gedragen wordt door een respectievelijk ondersteuningselement (22, 23, 24).



Stand der techniek

FIG. - 1

9500080

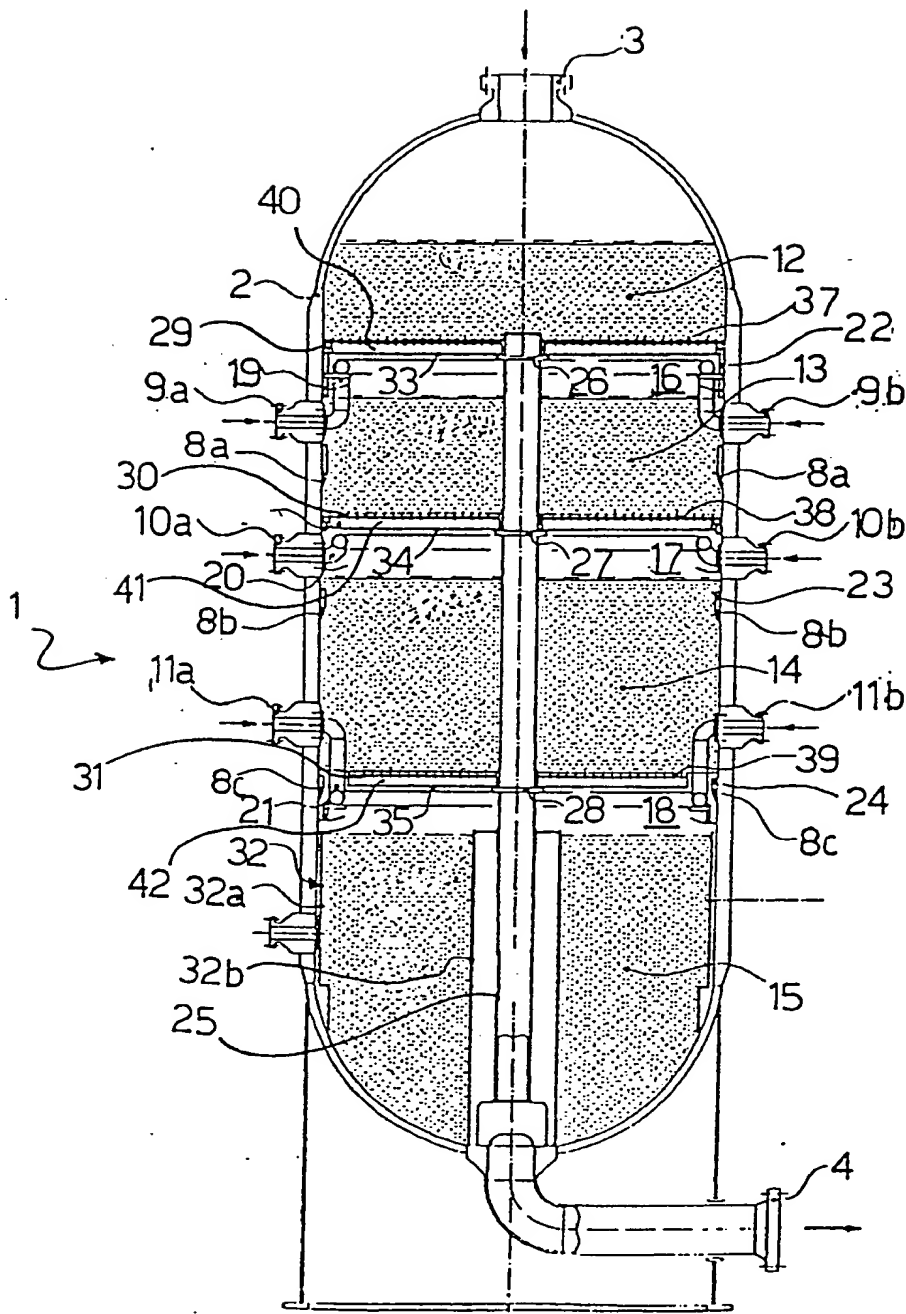


FIG. - 2

9500080

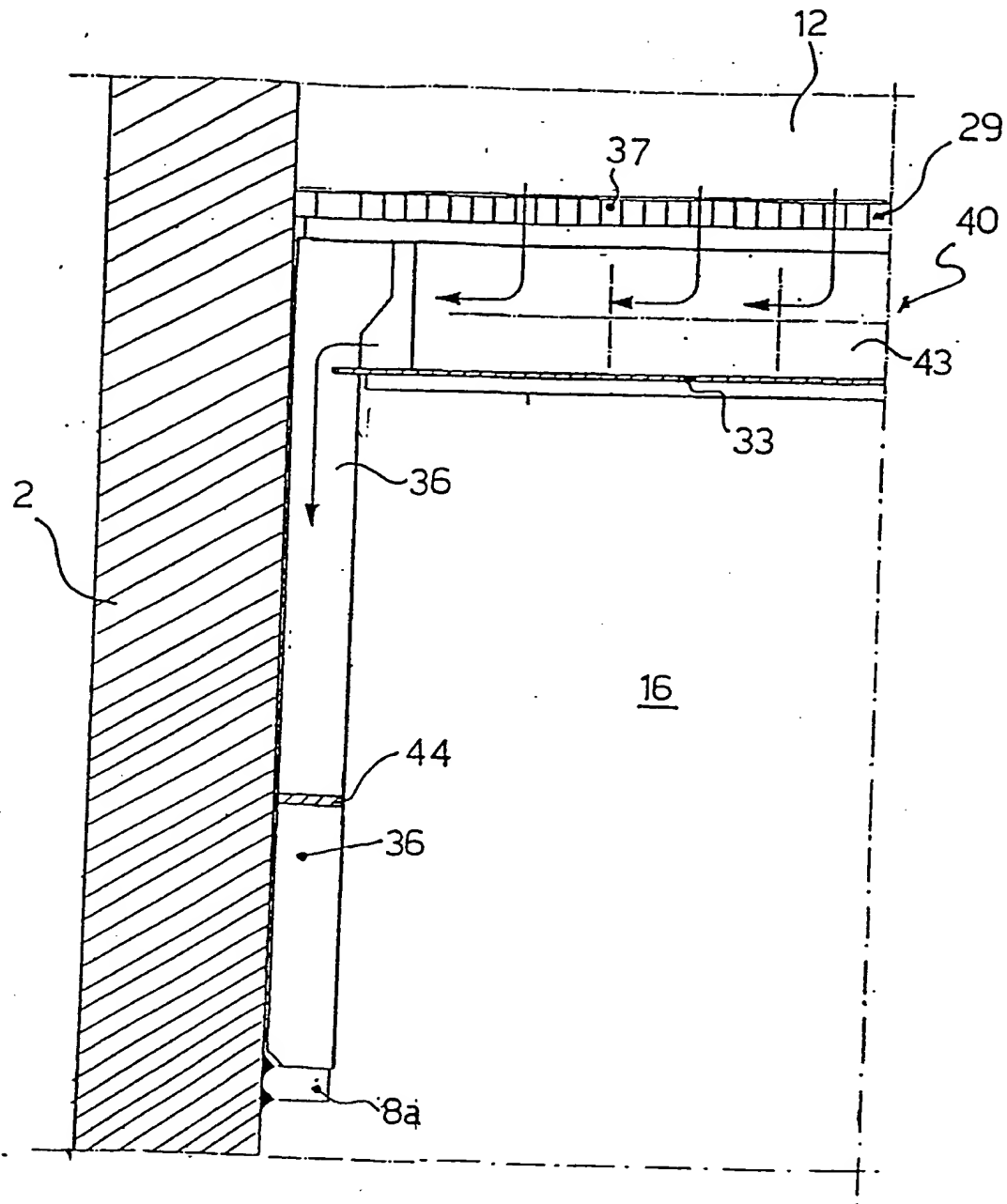


FIG. - 3

9500080

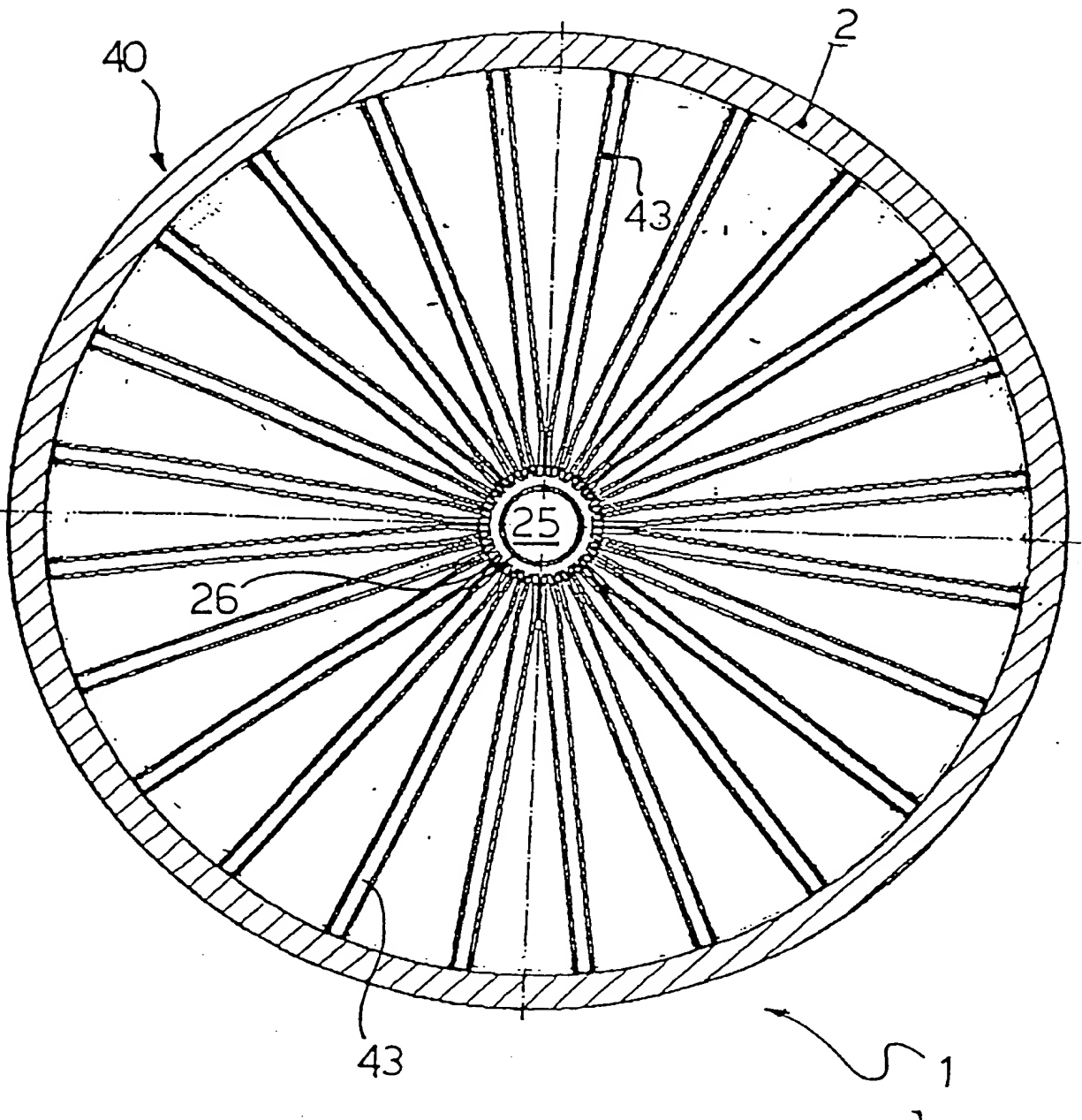


FIG. - 4

9500080